



Szegedi Tudományegyetem
Természettudományi és Informatikai Kar
Fizikai Kémiai és Anyagtudományi Tanszék
6720 Szeged, Aradi vértanúk tere 1.
Tel/Fax: (62) 546-482

Dr. Tóth Ágota
egyetemi tanár
Nemlineáris Dinamika és Kinetika Csoport
Tel: (62) 544-614 / **Fax:** (62) 546-482
E-mail: atoth@chem.u-szeged.hu

Opponensi vélemény

Dr. Horváth Attila

Kén- és halogéntartalmú oxoanionok összetett redoxireakcióinak kinetikája és mechanizmusa
című MTA doktori értekezéséről

Horváth Attila a hazai kinetikus közösség egyik prominens alakja, aki Szegedről Nagypál István tanítványaként került Pécsre és alakított ki önálló kutatócsoportot. Munkája a nemlineáris kémiai dinamikához is köthető, ami inkább a reakciók választásában nyilvánul meg, mint konkrét dinamikai vizsgálatokban.

Az elmúlt 15 év eredményeit összegző értekezésben különböző politionátok diszproporciós és egyéb kéntartalmú részecskékként (tioszulfát, szulfit) történő reakciói mellett jódval, klór-dioxiddal, illetve jódát-, perjódát-, és kloritionnal való reakciók kinetikai modellje is olvasható. Mindezen eredmények alapján egy elegáns általánosítással záruló munkába kezd bele a Jelölt, mégpedig az órareakciók csoportosítására tesz javaslatot, amihez, az értekezés címében szereplőkön túl, a jódát-arzénessav reakció kinetikai tanulmányozása is szükséges volt. A vizsgálatok során számos autokatalitikus lépésre bukkant Attila, melyek megfelelő körülmények között érdekes nemlineáris dinamikai jelenségeket eredményezhetnek. Ezek közül a tetracionátion fotokémiai indukált, oszcillációt eredményező bomlása került bemutatásra.

Az értekezés megfelel a MTA Doktori szabályzatnak, mert „minden tekintetben komplett és önmagában (a mögötte álló cikkek áttanulmányozása nélkül) értelmezhető és értékelhető munka.” A hozzákapcsolódó téziszfüzet pedig „az új tudományos eredmények rövid, tömör, tézispontokba szedett összefoglalása.” A Jelölt a téziszfüzetében 59 közleményt ad meg teljes életműveként, melyből kimagasló módon 52-ben első vagy levelező szerző és melynek közel 90 %-a Q1-es minőségű. A közlemények összesített hatástényezője 189,274, ami messze meghaladja a megadott minimális irányszámot. A tématerület kicsiny voltából származóan a kapott független hivatkozások száma egy kicsit alacsonyabb (346), de a minimális irányszámot mindenképpen túllépi.

Maga a doktori értekezés 24 tudományos közleményen alapul, amelyek a legnívósabb fizikai kémiai folyóiratokban (*J. Phys. Chem. A, Phys. Chem. Chem. Phys., Chem. Phys. Chem.*), a kimagasló hatástényezőjű *Journal of American Chemical Society*-ben, valamint a szintén kiváló minőségű *In-*



Tanszékvezető: Dr. Tóth Ágota, egyetemi tanár
E-mail: atoth@chem.u-szeged.hu

organic Chemistry-ben jelentek meg. Továbbá hangsúlyozni szeretném, hogy a közlemények mind-egyikében (!) Horváth Attila az első vagy levelező szerző.

Az értekezés terjedelme 157 oldal, amely a mondanivaló és az eredmények szemléltetésére 85 ábrát és 27 táblázatot tartalmaz. A dolgozat egy rövid, 9 oldalas bevezetéssel kezdődik, melyben a célkitűzések mellett mindössze 6 oldalban tekinti át az értekezéshez kapcsolódó irodalmi előzményeket. A következő fejezetben 3 oldalban sorolja fel a kísérletek leírásához szükséges alapvető információkat, amit a harmadik fejezetben szintén majd három oldalban érintett kiértékelési módszerek követ. Az értekezés hangsúlyos része az Eredmények a maga 120 oldalával, amelyet a megfelelő áttekintés érdekében, nagyon helyesen, további alfejezetekre osztott a Jelölt. Végezetül az érdemi rész a téziszüzethez hasonló, pontokba szedett összefoglalással zárul. Az értekezést végigolvasva derül ki, hogy az irodalmi áttekintést illetően sem marad hiányérzete az olvasónak, mert az Eredmények fejezetben is szerepelnek a modellalkotáshoz közvetlenül kapcsolódó közlemények. A 257 tételtől álló irodalomjegyzék pedig egyértelműen jelzi Horváth Attila szakirodalombeli tájékozottságát.

Összességében a dolgozatról elmondható, hogy ízléses, jó tagolású, megfelelő szakmai nyelvezettel bíró mű. Élvezet volt olvasni és a szerző logikáját követve látni az értekezés felépülését. A dolgozatban csak elvétve találtam tipográfiai, nyelvtani hibákat, melyeket ceruzával bejelöltem. Két hiányosság mellett azonban nem mehetek el megjegyzés nélkül. A megértést szolgáló ábrák megfelelően színezettek, de nagyon aprók, még nagyítóval is alig olvashatók (az elektronikusan is megkért verzióban tudtam csak az ábrákat kellő nagyításban nézni). Másik általános hibaként pedig a táblázatokban szereplő adatok (reakciók, sebességi egyenletek, sebességi együtthatók) túlságosan apró betűs szedettséget jegyzem meg. A nyomtatási felület, oldalméret és a grafikon, betűméret megfelelő nagyításával, esetlegesen másmilyen elrendezésével a disszertáció mérete sem növekedett volna jelentősen és az olvasás és értelmezés egyszerűbb lett volna az olvasó számára.

Horváth Attila munkájának eredményeit 11 tézispontban összegezte. A tézispontok száma és azok megfogalmazása megfelelő. A kinetika egyik szépsége, hogy bonyolult modellek is viszonylag egyszerű sebességi egyenleteket eredményeznek, amit számos példán mutatott be a Jelölt. Ugyanakkor nemcsak az eredmények közlésére szorítkozott, hanem azok átgondolásával például a politionátok és

az adott reagens közötti reakcióbeli különbségeket is értelmezte elméleti kémiai számításokat vagy szerkezetazonosítási módszereket is segítségül véve. Különösen tetszett a 4.2. táblázatban szereplő sebességi együtthatókbeli különbségek és hasonlóságok értékelése. Az értekezés főleg a kinetika területéhez tartozó kiemelkedő eredményeket tartalmaz; a munkából nemlineáris kémiai dinamikai szempontból is értékes a számottevő klorit-ion feleslegben lejátszatott klorit–tetratiónát reakciót is leírni képes háromváltozós modell és az órareakcióknak a szubsztrát-fogyás és az autokatalízis-vezérelt osztályokra történő csoportosítása. A tézispontokban foglaltak mindegyikét új tudományos eredménynek fogadom el.

A dolgozat olvasása közben megfogalmazódott kérdéseim a következők:

1. Mi alapján került kiválasztásra, hogy mikor abszorbancia mikor pedig koncentráció időbeli változásán keresztül szemléltethető a modell jósága? A közleményekben biztosan szerepel, de az értekezésben nem ismertetett, hogy az egyes abszorbanciákon melyik részecskék mennyisége határozható meg? Maximálisan, illetve tipikusan hány részecskéről hordozott információt a követett abszorbancia? Hány hullámhossz párhuzamos követéséből történt a kinetikai modellek felállítása, mert az értekezés alapján úgy tűnik, hogy mindig csak egy hullámhossz adatai kerültek felhasználásra?
2. Az egyes köztitermékek, adduktok közül melyekre van egyértelmű bizonyíték? Például az $S_xO_6I^-$ vagy az $S_xO_6ClO_2^{2-}$ részecske létezése logikus, de kísérletileg bizonyított is?
3. A kinetikai modell építése során a modellhez leggyakrabban további reakciók hozzáadásával adja meg a végleges kinetikai modellt. Milyen előnyökkel jár ezen közelítés a más csoportoknál alkalmazott bővebb mechanizmus érzékenység analízissel történő szűkítéséhez képest?
4. A Landolt-idő meghatározásához szükséges numerikus integráláshoz milyen módszert alkalmaztak?
5. A bonyolultabb modellek segítségével lehetővé vált-e újabb nemlineáris dinamikai jelenség jóslása, esetlegesen újabb dinamikai rendszer előállítása?
6. Sikert-e a bevezetésben is említett klorit-tioszulfát rendszerre egy olyan, az FKN mechaniz-

mushoz hasonló egyszerűségű, modell felállítása, ami képes a rendszerben tapasztalt nemlineáris dinamikai jelenségek nagyobb részének magyarázatára?

Összegezve, az értekezés igényesen kivitelezett kísérletek alapján felépített kinetikai modelleket és azokból levonható következtetéseket ismertet koherens módon. Az értekezés alapjául szolgáló közlemények minősége kiemelkedő. Mindegyik tézispont új tudományos eredményt tartalmaz, mely a reakciókinetika területének fejlődéséhez jelentős mértékben járul hozzá a teljes kinetikai görbék figyelembevételével és ezek fontosságának hangsúlyozásával. A tudományos eredményeket bőven elegendőnek tartom az MTA doktori cím megszerzéséhez, és melegen támogatom a nyilvános védés kitűzését.

Szeged, 2018. február 9.

Dr. Tóth Ágota
tanszékvezető egyetemi tanár
SZTE, Fizikai Kémiai és Anyagtudományi
Tanszék